

Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 56138876
PUBLICATION DATE : 29-10-81

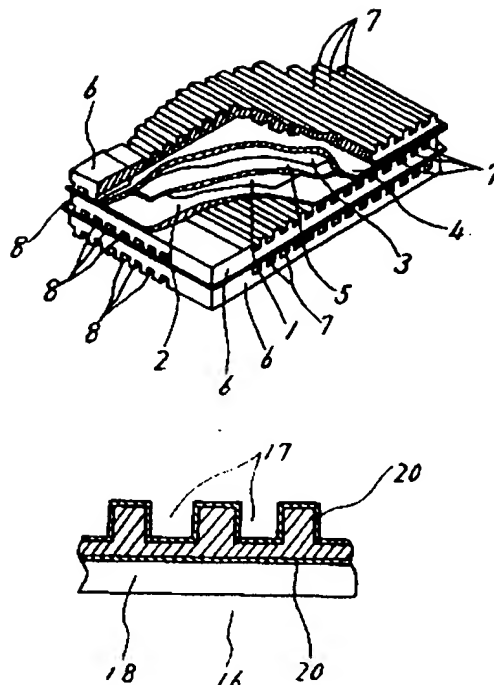
APPLICATION DATE : 31-03-80
APPLICATION NUMBER : 55040234

APPLICANT : TOSHIBA CORP;

INVENTOR : SHIROGAMI TAMOTSU;

INT.CL. : H01M 8/02

TITLE : FUEL CELL



ABSTRACT : **PURPOSE:** To prevent passages for both a fuel gas and an oxidizing gas from being blocked, obviate any elution and swelling of ditches formed on a bipolar separator, the surface of which is provided with the passages for supplying the reaction gases, and thereby stabilize the performance of a fuel cell by performing water repellent treatment over the surface of the separator.

CONSTITUTION: Both surfaces of a bipolar separator 16 are provided with ditches 17 and 18 which serve as passages for gases. The entire surface of the separator 16 has a water repellent coating 20 which works against electrolyte. The separator 16 is prepared from a material consisting of, for example, 80% of a graphite and 20% of a phenol resin. The coating 20 is prepared from a material which is thermally and chemically stable at an operational temperature, such as fluoroethane propylene resin or 4-fluoroethane resin. Mixtures 1 and 3, each of which consists of activated carbon and platinum, are applied to carbon papers 2 and 4 before they are sintered, a fuel electrode and an air electrode being made, respectively. These electrodes are laminated with the bipolar separator 16 interposed between them. After that, an electrolyte-holding layer 5 made of a nonwoven cloth is impregnated with a phosphoric acid electrolyte, thus a fuel cell being constituted.

COPYRIGHT: (C)1981,JPO&Japio

⑩ 日本国特許庁 (JP)
⑫ 公開特許公報 (A)

⑪ 特許出願公開
昭56—138876

⑤ Int. Cl.³
H 01 M 8/02

識別記号

庁内整理番号
7268—5H

⑬ 公開 昭和56年(1981)10月29日

発明の数 1
審査請求 有

(全 4 頁)

⑭ 燃料電池

⑯ 特 願 昭55—40234

⑰ 出 願 昭55(1980)3月31日

⑱ 発 明 者 上野三司
川崎市幸区小向東芝町1 東京芝
浦電気株式会社総合研究所内

⑲ 発 明 者 宗内篤夫
川崎市幸区小向東芝町1 東京芝
浦電気株式会社総合研究所内

⑲ 発 明 者 村田謙二

川崎市幸区小向東芝町1 東京芝
浦電気株式会社総合研究所内

⑲ 発 明 者 城上保

川崎市幸区小向東芝町1 東京芝
浦電気株式会社総合研究所内

⑳ 出 願 人 東京芝浦電気株式会社

川崎市幸区堀川町72番地

㉑ 代 理 人 弁理士 則近憲佑 外1名

明 細 書

1. 発明の名称 燃料電池

2. 特許請求の範囲

燃料極と酸化剤極との間に電解液保持層を設けて成る単位電池と、この単位電池を前記各極に燃料ガス及び酸化剤ガスを供給する通路を表面に形成した双極性隔離板を介して複数個積層して構成された燃料電池において、前記双極性隔離板の表面に前記電解液に対して親水性を有する被覆を形成したことを特徴とする燃料電池。

3. 発明の詳細な説明

本発明は、双極性隔離板を改良した燃料電池に関する。

従来、リン酸を電解質とする燃料電池において、薄加工を施した双極性隔離板は、電池の電極に近接した部位に燃料ガス及び酸化剤ガスを供給する為のガス供給通路を構成する目的で使用されて来た。この双極性隔離板の上記の他に具備すべき機能として以下のことが挙げられる。

燃料ガスと酸化剤ガスの拡散、透過を防止する

為に緻密度の高い材料を使用することが必要である。多数の単位電池を積層した電池体の構造を維持する構造材料であるので機械的強度が十分でなければならない。又、燃料極及び酸化剤極と接して、電極反応に伴う電流通過の媒体となるので、電気導電性が高いことが必要とされる。電池作動時に発生する生成熱を効率よく除去する為に、冷却媒体(例えば空冷孔、放熱フィン、冷却材)に熱を伝導させる為に、高熱伝導度が必要である。

以上のように、双極性隔離板は反応ガス供給性、緻密度、機械的強度、電気導電性、熱伝導性、その他耐熱性、耐薬品性、及び製造コストの要因も加味して総合的観点より選定される必要がある。

このような特性を有する材料として従来たとえば特公昭50—11355号明細書に示されるように焼結グラファイト、又はグラファイトに熱硬化性のフェノール樹脂をバインダーとして加えた材料が使用されている。

これらは、高緻密度、高強度、高電気伝導度であることが知られており、燃料電池用双極性隔離

板の材料として用いられている。このような双極性隔離板を用いた燃料電池は、例えば、第1図に示すような単位電池が図示しない容器内に積層されて構成されている。

第1図で、(1)は燃料極触媒層、(2)はその触媒層を支持する支持体で例えば通常はカーボンペーパーが用いられている。(3)は空気極触媒層、(4)はその支持体例えばカーボンペーパーが用いられている。(5)は電解液保持層で、耐リン酸、耐熱性、水素イオン導電性の高い高分子不織布又は無機不織布より構成されている。(6)は双極性隔離板で、両面に図示しない各供給源から供給される燃料ガスと空気等の酸化剤ガスを供給する為の溝(7),(8)を、互いに直交方向に設けたもので隣接する各単位電池は、これを介して積層される。

上記のような単位電池が積層されて構成される燃料電池を高濃度のリン酸を使用し、150℃～190℃で長期間作動させると、燃料電池の作動特性は徐々に低下してゆくことが知られている。

例えば、第2図にその作動特性の一例を示す。

(3)

見い出した。通常、電解液は電解液保持層から、電極を通して滲出し、徐々に双極性隔離板の溝部に溜まる。このようにして溜った電解液は、反応ガスの流れを妨げたり、閉塞することなどにより、電極への反応ガスの供給不足をもたらし、電池性能を低下せしめる。又、双極性隔離板の電解液に濡れた部分が、長期間、高温度、高濃度のリン酸に曝されている間に溶出したり膨潤したりすることにより電極触媒が剥離したり、双極性隔離板と電極あるいはシール部との密着性が不良となり、反応ガスの漏れや、反応ガス相互の拡散などの現象が生じ、徐々に電池性能が低下する。

本発明者らは、このような弊害を防止するために、双極性隔離板に撥水処理を施すことにより、電解液による濡れを防止出来ることを見い出した。

本発明によれば、電解液に撥水剤を双極性隔離板の表面に施すことにより、溶出した電解液は双極性隔離板の面で広がったり、濡れたりすることなく水玉状となる。このような水玉状となつた電解液は、反応ガス流によつて容易に吹き飛ばされ

特開昭56-138876(2)

図は、単位面積当り150mA/cm²で放電を行つた時の単位電池の電圧の変化を比較例として点線で示してある。図より明らかな如く、単位電池の電圧は、時間の経過につれて減少している。因みに1000時間当りの電圧減少は約30mVに相当する。従来、このような燃料電池の出力低下の主要な原因としては、

- (1) 触媒粒子の塊集、再結晶化による触媒の有効反応面積の減少
 - (2) 電解液又は、反応生成水によるガス電極反応に活性な三相帯の濡れによる減少
 - (3) 電極、電解液保持層を通しての燃料ガス、酸化剤ガスの相互拡散
- などが挙げられる。

従来、燃料電池の高性能化、長寿命化への試みは、主に、上記の障害への対策であり、これまでもある程度の成果を得ている。

一方、本発明者らは、双極性隔離板が電解液に濡れ、その結果引き起こされる種々の弊害が、電池性能低下、寿命低下の主要な一因であることを

(4)

る。それ故、反応ガスの流れが妨げられたり、閉塞されることはない。

又、電解液による双極性隔離板の溶出、膨潤、も生じないので、長期に亘つて安定な電池性能を得ることが出来る。

次に本発明の一実施例を第3図により説明する。

図は本発明の構成の要部である双極性隔離板40の一部を示した断面図で、両表面にガス通路を形成する溝70,80が設けられており、全表面には電解液に対する撥水性被覆41を有する。被覆41は作動温度における熱的・化学的に安定な材質から選ばれる。上記双極性隔離板40は下記の過程で形成される。双極性隔離板の材料として、グラファイト80%、フェノール樹脂20%、比重1.85の成型材料を用いた。隔離板の大きさは30cm×30cm、厚さ6mm、両面に凸の幅2mm、凹の幅2mm、深さ2mmの溝を成型あるいは切削加工により設けた。この双極性隔離板を6wt%のフッ化エチレンプロピレン溶液に2分間浸漬し、引き上げ、空気乾燥後、窒素雰囲気中で300℃にて10分間焼成し

(5)

(6)

撥水性を有する被覆を表面に形成した。

又、燃料極及び空気極として、活性炭に白金を添加したものをカーボンペーパーに塗布後焼成して、第1図に示したように、双極性隔離板を介して10個の単位電池を積層した。

燃料として水素ガスを酸化剤ガスとして、空気を、使用し95%のリン酸電解液を、フェノール樹脂不織布より成る電解液保持層に含浸した。

このように構成された本発明の燃料電池を、温度170℃、単位面積当り150mAで長期に亘つて放電した際の単位電池当りの電圧の変化を第2図に実線で示す。なお比較例として点線で示した電圧の変化は前記の通り双極性隔離板に撥水処理を施さない場合の例である。

図より明らかな如く、撥水処理を施さない燃料電池では1000時間当りの電圧降下が約30mVであるのに対して、本発明の燃料電池では1000時間当り15mVの電圧降下であり、本発明が電池性能低下の抑制に有効であることを示している。

又、次に示す表に同様な条件で並行して試験を

(7)

この表より明らかな如く、比較例で示した燃料電池では時間の経過につれて、溶出した電解液によるガス流通路の閉塞、溶部の溶出、膨潤及び密閉不良等の障害が生じてくる。これに対して、本発明に係る双極性隔離板では、上記の障害は殆んど防止され、長期間に亘つて安定であることを示している。

又、上記実施例では、撥水剤として、フッ化エチレンプロピレン樹脂を用いたが、他に4フッ化エチレン樹脂、三フッ化塩化エチレン樹脂、フッ化ビニリデン、6フッ化プロピレン樹脂など、リン酸に対して表面張力が大きく、電池作動温度が安定な樹脂を使用することが出来る。

以上のように、双極性隔離板に電解液たとえばリン酸電解液に対して、表面張力の大きい樹脂を被覆することにより溶出した電解液による反応ガス流通路の閉塞、溶部の溶出、膨潤、及び密閉不良等の障害を防止して電池性能を長期に亘つて、安定化させることが出来る。

4. 図面の簡単な説明

(9)

特開昭56-138876(3)

行つた燃料電池の1000時間、2000時間、3000時間経過後に双極性隔離板の分解調査を行つた際の観察結果を示す。

なお表中の各符号は

- : 変化なし

+ : わずかに認められる

++ : 明らかに認められる

+++ : ++より程度のひどいもの

をそれぞれ示すものである。

表

経過時間		1000	2000	3000
溶出電解液の溶部への溶り具合	比較例	+	++	+++
	本発明	-	-	-
溶部溶出の程度	比較例	-	+	++
	本発明	-	-	-
膨潤の程度	比較例	-	+	+
	本発明	-	-	-
密閉部(シール部)劣化の程度	比較例	-	+	++
	本発明	-	-	+

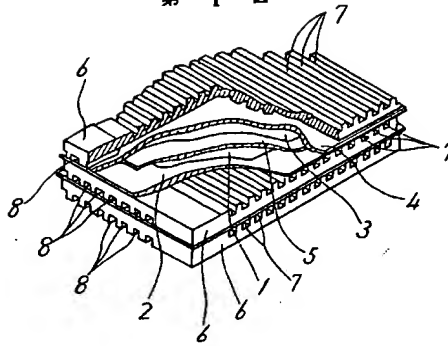
(8)

第1図は燃料電池の構成を一部を切欠いて示す斜視図、第2図は燃料電池の電圧変化を示す特性図、第3図は本発明の要部を構成する双極性隔離板の一部を示す断面図である。

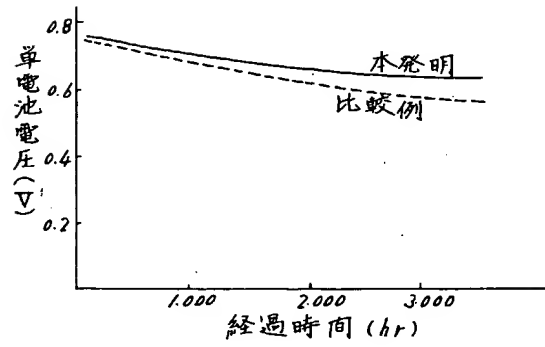
00…双極性隔離板、00…被覆

(7317) 代理人 井理士 則 近 窓 佑 (ほか1名)

第 1 圖



第 2 圖



第 3 圖

